

PI JP 52133085 A 19771108 (197751)*
JP 56052853 B 19811215 (198202)

PRAI JP 1976-48486 19760430

IC C01B033-00; C30B015-00; C30B029-06

AB JP 52133085 A UPAB: 19930901

Highly pure silicon is produced by directly contacting a gaseous mixt. of chlorosilane and hydrogen with molten silicon of high degree of purification.

Typically, the gaseous mixt. is introduced through an inlet pipe into the molten silicon, and the resulting waste gas is exhausted through an outlet pipe to atmosphere. Highly pure silicon plate is pulled out with a guide roller. Process is suitable for mass prodn. of highly pure silicon plates.

⑨日本国特許庁
公開特許公報

⑩特許出願公開
昭52—133085

⑪Int. Cl. ² 識別記号	⑫日本分類	庁内整理番号	⑬公開 昭和52年(1977)11月8日
B 01 J 17/18	13(7) D 522.2	7158—4A	
C 01 B 33/02	10 R 33	7047—42	発明の数 1
	99(5) A 02	6521—57	審査請求 未請求

(全 3 頁)

⑭高純度シリコンの製法

東京都目黒区中央町2丁目21番
27号

⑮特 願 昭51—48486
⑯出 願 昭51(1976)4月30日
⑰発 明 者 菅福彦
大宮市北袋町1丁目190番地
同 富沢憲治
大宮市吉野町2丁目102番地
同 小林慎一郎

⑱発 明 者 工藤勃士
流山市東深井970番6号
⑲出 願 人 三菱金属株式会社
東京都千代田区大手町1丁目5
番2号
⑳代 理 人 弁理士 松井政広

明 細 書

1. [発明の名称]

高純度シリコンの製法

2. [特許請求の範囲]

精製した塩化シランと水素の混合物を高純度シリコンの融解浴と直接接触させることを特徴とする高純度シリコンの製法。

3. [発明の詳細な説明]

本発明は高純度シリコンの製法に関する。

シリコンは今日最も広く使用されている半導体材料であるが、近年複雑な微細構造を有する集積回路、大容量高周波のトランジスタ等の普及増進をはじめ、半導体の光電効果を利用した太陽光発電計画の推進等から、高純度の単結晶シリコンを得ることが半導体工業における基本的要請となつてゐる。

従来、高純度単結晶シリコンは分解その他の反応によつてシリコンを生成する気体材料を高度に精製し、これを900～1200℃程度に加熱した高純度シリコン、またはタンタルのような高融

点金属材料の、棒、フィラメント、リボンなどと接触させて、それらの表面に高純度多結晶シリコンを析出させ、このようにして生成したシリコンを一度室温まで冷却して適当な大きさに切断し、酸洗浄したうえで1450℃以上の温度で融解し、種単結晶を付けて単結晶を成長させるチヨクノルスキー (Czochralski) 法が一般的であつた。

しかしこのような現在の高純度単結晶シリコンの製造工程は、いずれも多結晶シリコン(高純度シリコン)製造工程と単結晶シリコン製造工程とを連続してゐないため、900～1200℃で生成させた多結晶シリコンを一度、室温まで冷却してから、単結晶シリコンを製造するために1450℃以上の温度で再融解しなければならない。そのため、熱エネルギーの損失はきわめて大きく、省エネルギーの観点から不合理であるとともに、生産コストを増大してゐる。

そのため、この2工程を連続化するための試みが行われ、例えば特開昭51—25069に開示されたような技術が開発されてきた。

これらの方法は、高純度シリコンの融解浴から一方で種結晶によつてシリコン単結晶を引き出し、他方において浴の補給を行うものである。本発明の方法は主としてこの浴補給に利用されるものである。

既知の方法では何れも高純度シリコン生成のためのシリコン生成気体の分解ないし水素による還元反応によるシリコンの析出はシリコンの融点以下で行われ、その融点以上で行なうことは不利とされていた。それはこの析出反応の律速段階が反応体の拡散段階にあり、拡散速度を制御できない限りは最も有利な平衡温度で反応を進める他はないと考えられたからである。本発明者は過去の前述に拘われず、シリコン生成気体を直接シリコン融液に強制的に接触させることによつて有利に高純度シリコンが生成することを確証し、本発明を完成した。かくて高純度シリコン製造工程を簡易化して将来の需要増加に足る大量生産の方法の端緒を開いた。

即ち本発明によれば、精製した塩化シランと水

素の混合物を高純度シリコンの融解浴と直接接触させることを特徴とする高純度シリコンの製法が提供される。

本発明の方法においては、高純度シリコン融解浴を得るには、最初に必要量の高純度シリコン融解浴を準備し、これと高純度シリコン生成気体を接触させるのであつて、そのために充分な融解物の表面が確保されていればよいのであつて、その接触方法には何らの制限がない。しかしながら通常はシリコン生成気体を導入管により、シリコン融解浴の液面下に導入してバブリングさせるか、導入管の先を細めてシリコン生成気体を速い流速で浴の表面に吹きつけいわゆる吹き込み浴溶法により、融解浴の表面に深い凹みを生じさせる方法が好ましい。本発明において使用されるシリコン生成気体は三塩化シラン、四塩化シリコン等の塩化シランと水素の混合物である。

このように高純度シリコン製造の工程は著くほど簡易化される。

高純度シリコン浴からの単結晶製造の工程は、

本願出願人によつて已に特許出願されている横引きリボン単結晶製造法（特願昭50-91099号、特願昭50-100112号等）、または既知の横引きリボン結晶製造法などの、原理的には無時間連続的に単結晶を製造し得る方法を採用するのが好ましいが、旧来のチヨクラスキー法の単結晶製造工程を採用しても差しつかえない。

次に図面を参照しつつ本発明を実施例によつて詳細に説明する。第1図と第2図は本発明の方法を実施するための装置の概念図である。これらの図において、1はシリコン融解浴（ルツボ）である。2は該ルツボの1部を覆う天蓋部であり、その1部分2'は底部において浴の連通を許す隔壁を形成している。天蓋部2にはシリコン生成気体5の導入管3、反応済み気体6の排出管4が設けられている。7は高純度シリコンの浴であり、底部の連通により天蓋部の内外において等しい液面を保つ。8はガイドローラーである。

ルツボ、および天蓋部は、通常シリカで造られる。導入管と排出管は、シリカ、アルミナ、ジル

コニア等のセラミック、タンタル、ステンレス鋼、ハステロイ等の耐熱金属材料で造られる。

ルツボは既知の適当な手段によつて加熱される。1実施例において、ルツボにあらかじめ高純度シリコン多結晶300gを装入し、グラフアイト発熱体を高周波加熱することによつて融解した。次いで、先端を内径約2mmに絞ったタンタル製のガス導入管をシリコン融解浴の表面上約2mmに調整して設置し、三塩化シラン10gを含有する水素を100 ml/minの流速で導入した。この状態で約5時間後ガス出口4でのガス組成は四塩化シリコン0.5g、三塩化シラン1g、水素75.5g、塩化水素23gであつた。

一方、しきり板2で気相部分は仕切られているが、シリコン融解物は底部で単結晶製造部と連通している。単結晶製造部では、モノシランの導入後7時間後から約15分間、横引き法で長さ約30cm、巾2cm、厚さ2mmのリボン単結晶が製造された。

第1図に示すようにシリコン生成ガスをシリコン浴の液面下に吹き込んでも略同様な結果が得ら

れる。

4.〔図面の簡単な説明〕

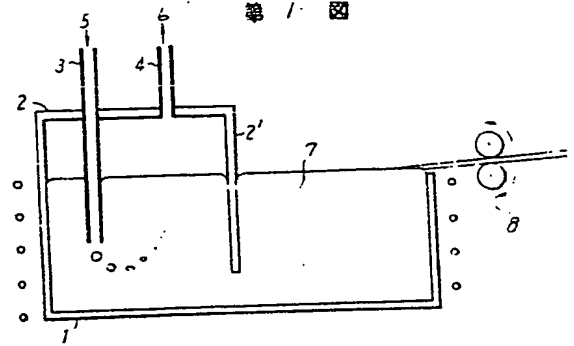
第1、2図は本発明の方法を実施する装置の概念を示す。これらの図面において：

1：ルンボ、2：天蓋部、2'：隔壁、3：シリコン生成気体導入口、4：阿気体排出口、7：シリコン融解浴、8：ガイドローラー。

特許出願人 三菱金属株式会社

代理人 弁理士 松 井 政 広

第1図



第2図

